

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

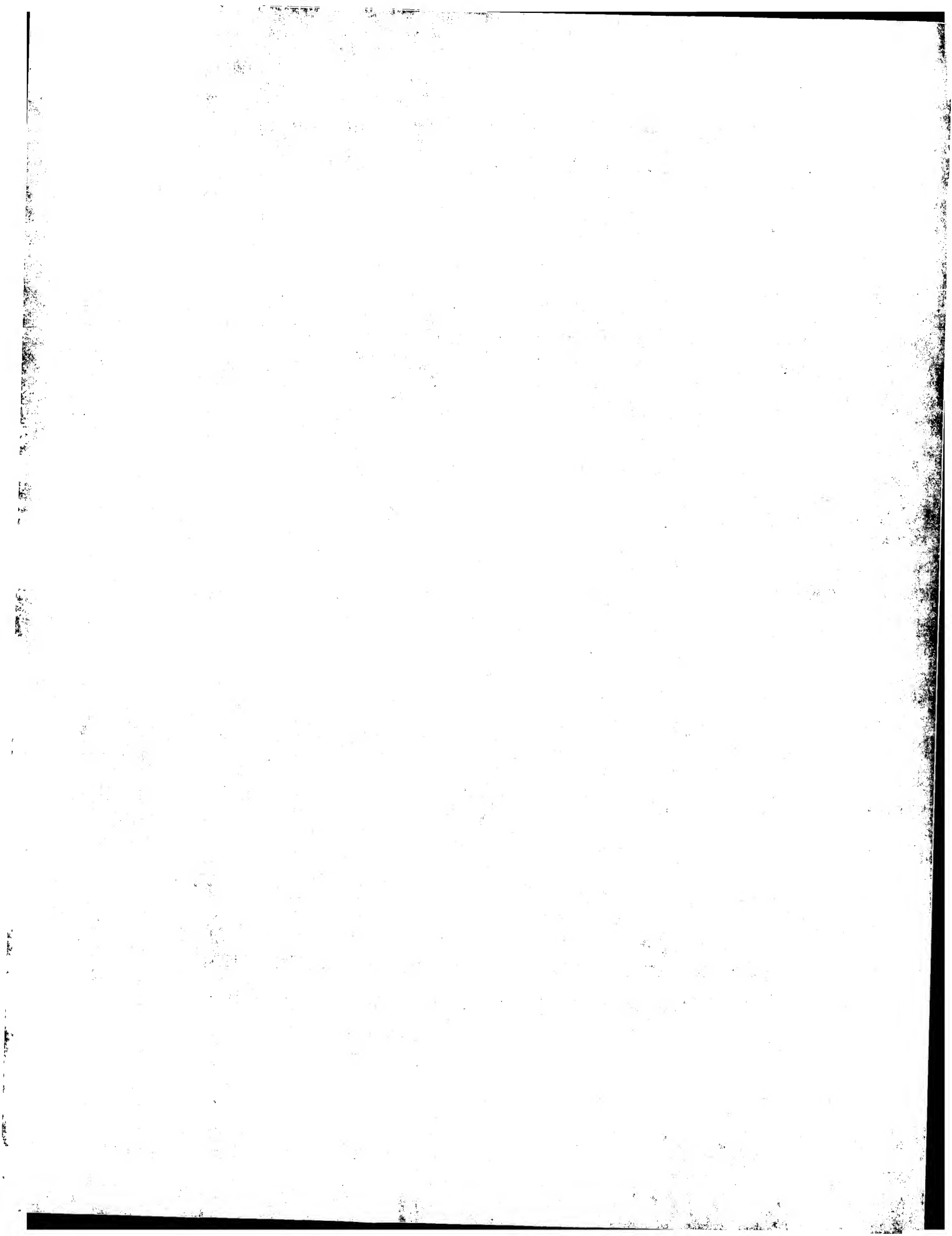
Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**



**PCT**WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
Internationales BüroINTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation <sup>6</sup> : C08K 5/00, 5/29, 3/00, C08L 77/00, 67/00		A1	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 99/29768  (43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 17. Juni 1999 (17.06.99)
(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP98/07690 (22) Internationales Anmeldedatum: 28. November 1998 (28.11.98)  (30) Prioritätsdaten: 197 54 418.5 9. Dezember 1997 (09.12.97) DE  (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE).  (72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): VOIGT, Michael [DE/DE]; Düsseldorfer Strasse 8, D-47239 Duisburg (DE). JESCHKE, Kurt [DE/DE]; Ansbacher Strasse 24, D-40597 Düsseldorf (DE). ECKERT, Armin [DE/DE]; Hein- rich-von-Kleist-Strasse 13, D-68766 Hockenheim (DE). MÜLLER, Volker [DE/DE]; Schützenweg 7, D-76661 Philippsburg (DE).  (74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGE- SELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE).		(81) Bestimmungsstaaten: AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).  Veröffentlicht Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.	
(54) Title: STABILIZED MOLDING COMPOUNDS COMPRISED OF BIOLOGICALLY DEGRADABLE MATERIALS  (54) Bezeichnung: STABILISIERTE FORMMASSEN BIOLOGISCH ABBAUBARER MATERIALIEN  (57) Abstract <p>The invention relates to stabilized thermoplastic molding compounds comprised of biologically degradable polymers which are stabilized against hydrolytic and microbial degradation and a method for producing concentrates based on thermoplastic biologically degradable polymers. The invention also relates to a method for producing hydrolysis stabilized and antimicrobial or microbistatic acting thermoplastic biologically degradable molding compounds as well as to the utilization of the inventive stabilized molding compounds as biologically degradable materials for the production of semi-finished goods, films, injection molded parts, monofilaments, multifilaments, fibers, non-wovens and wovens. In addition, the invention relates to the molded bodies produced from the molded compounds such as semi-finished goods, films, injection molded parts, monofilaments, multifilaments, fibers, non-wovens and wovens.</p> (57) Zusammenfassung <p>Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind gegen hydrolytischen und mikrobiellen Abbau stabilisierte thermoplastische Formmassen aus biologisch abbaubaren Polymeren, ein Verfahren zur Herstellung von Konzentraten auf Basis thermoplastischer biologisch abbaubarer Polymere, ein Verfahren zur Herstellung hydrolysestabilisierter und antimikrobiell oder mikrobistatisch wirkender thermoplastischer, biologisch abbaubarer Formmassen sowie die Verwendung der erfindungsgemäß stabilisierten Formmassen als biologisch abbaubare Werkstoffe für die Herstellung von Halbzeugen, Folien, Spritzgußformteilen, Mono- und Multifilamenten, Fasern, Vliesen und Geweben sowie die daraus hergestellten Formkörper bzw. Halbzeuge, Folien, Spritzgußformteile, Mono- und Multifilamente, Fasern, Vliese und Gewebe selbst.</p>			



(19) 日本国特許庁 (J P)

## (12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号

特表2001-525473

(P2001-525473A)

(43) 公表日 平成13年12月11日 (2001. 12. 11)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup>

識別記号

F I

ターマコード (参考)

C 0 8 L 101/16

C 0 8 L 101/16

4 J 0 0 2

C 0 8 K 3/00

C 0 8 K 3/00

5/00

5/00

5/29

5/29

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 29 頁)

(21) 出願番号 特願2000-524352(P2000-524352)  
 (86) (22) 出願日 平成10年11月28日 (1998. 11. 28)  
 (85) 翻訳文提出日 平成12年5月22日 (2000. 5. 22)  
 (86) 国際出願番号 P C T / E P 9 8 / 0 7 6 9 0  
 (87) 国際公開番号 W O 9 9 / 2 9 7 6 8  
 (87) 国際公開日 平成11年6月17日 (1999. 6. 17)  
 (31) 優先権主張番号 1 9 7 5 4 4 1 8 . 5  
 (32) 優先日 平成9年12月9日 (1997. 12. 9)  
 (33) 優先権主張国 ドイツ (D E)

(71) 出願人 バイエル・アクチエンゲゼルシャフト  
 BAYER-AKTIENGESELLS  
 CHAFT  
 ドイツ連邦共和国デー51368 レーフェル  
 クーゼン (番地なし)  
 (72) 発明者 フオイヒト, ミヒヤエル  
 ドイツ連邦共和国デー47239ドウイスブ  
 ルク・デュツセルドルフアーシュトラッセ  
 8  
 (72) 発明者 イエシユケ, クルト  
 ドイツ連邦共和国デー40597デュツセル  
 ドルフ・アンスバツハーシュトラッセ24  
 (74) 代理人 弁理士 小田島 平吉

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 生物分解性物質の安定化された成形組成物

## (57) 【要約】

本発明は加水分解による分解及び微生物による分解に対して安定化されている生物分解性ポリマーから成る安定化された熱可塑性成形組成物、及び熱可塑性生物分解性ポリマーをベースとする濃厚物を製造する方法に関する。本発明は、加水分解安定化されそして抗微生物又は静菌作用のある熱可塑性生物分解性成形コンパウンド、及び半仕上げ製品、フィルム、射出成形品、モノフィラメント、マルチフィラメント、繊維、不織布及び織布の製造のための生物分解性材料としての本発明の安定化された成形コンパウンドの利用にも関する。更に、本発明は、半仕上げ製品、フィルム、射出成形品、モノフィラメント、マルチフィラメント、繊維、不織布及び織布の如き成形されたコンパウンドから製造された成形体 (molded bodies) に関する。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 生物分解性ポリマーと、

群A1)及びA2)、

A1) 全混合物を基準として、加水分解安定剤から成る群の中の少なくとも1種から選ばれた安定剤0～50重量%、及び／又は

A2) 全混合物を基準として、抗微生物剤から成る群の中の少なくとも1種から選ばれた安定剤0～50重量%、

から選ばれた少なくとも1種の安定剤と、

B) 全混合物を基準として充填剤及び強化物質0～85重量%と、を含有して成る熱可塑性成形組成物。

【請求項2】 脂肪族(コ)ポリエステル、芳香族-脂肪族(コ)ポリエステル、ポリカーボネート、ポリエステル-カーボネート、脂肪族又は部分的芳香族ポリエステル-ウレタン、ポリエステル-アミド、ポリエーテル-アミド、ポリエーテル-エステル-アミド、セルロースエーテル、セルロースエーテル-エステル、熱可塑性デンプン及びデンプン誘導体又はコポリマー及び／又はそれらの混合物から成る群の中の少なくとも1種から選ばれた生物分解性ポリマーを含有して成る請求項1の成形組成物。

【請求項3】 該ポリマーが、

A) 脂肪族二官能性アルコール、及び／又は随時環状脂肪族二官能性アルコール、及び／又はジオールの一部又はすべての代わりに、エチレングリコール、プロピレングリコール、又はテトラヒドロフランをベースとするモノマー又はオリゴマーポリオール又は8000までの分子量を有するそれらのコポリマー、及び／又は随時少量の分岐状二官能性アルコール、及び追加的に随時少量のより高い官能性のアルコール、及び、脂肪族二官能性酸、及び／又は随時芳香族二官能性酸、及び追加的に随時少量のより高い官能性の酸、又は

B) 酸及びアルコール官能基を有する構築ブロック又はその誘導体、又はAとBの混合物及び／又はコポリマー、

但し芳香族酸はすべての酸を基準として50重量%以下の含有率を構成する、からの脂肪族又は部分的芳香族ポリエステル；

C) 脂肪族二官能性アルコール、及び／又は随時環状脂肪族二官能性アルコール、及び／又はジオールの一部又はすべての代わりに、エチレングリコール、プロピレングリコール、又はテトラヒドロフランをベースとするモノマー又はオリゴマーポリオール又は4000までの分子量を有するそれらのコポリマー、及び／又は随時少量の分岐状二官能性アルコール、及び追加的に随時少量のより高い官能性のアルコール、及び、脂肪族二官能性酸、及び／又は随時芳香族二官能性酸、及び追加的に随時少量のより高い官能性の酸、又は

D) 酸及びアルコール官能基を有する構築ブロック、又はそれらの誘導体、又はCとDの混合物及び／又はコポリマー、

但し芳香族酸はすべての酸を基準として50重量%以下の含有率を構成する、

E) C及び／又はDと、脂肪族及び／又は環状脂肪族二官能性イソシアネート及び追加的に随時より高い官能性のイソシアネート、随時追加的に線状及び／又は分岐状及び／又は環状脂肪族二官能性アルコール及び／又はより高い官能性のアルコール、及び／又は随時追加的に線状及び／又は分岐状及び／又は環状脂肪族二官能性アミン及び／又はアミノアルコール及び／又はより高い官能性のアミン及び／又はアミノアルコール、及び／又は随時更に変性されたアミン又はアルコールとの反応生成物、

但しエステル含有率C)及び／又はD)は、C)、D)及びE)の和を基準として少なくとも75重量%である、

からの脂肪族又は部分的芳香族ポリエステル-ウレタン；

F) 脂肪族二官能性アルコール、及び／又は随時環状脂肪族二官能性アルコール、及び／又はジオールの一部又はすべての代わりに、エチレングリコール、プロピレングリコール、又はテトラヒドロフランをベースとするモノマー又はオリゴマーポリオール又は4000までの分子量を有するそれらのコポリマー、及び／又は随時少量の分岐状二官能性アルコール、及び追加的に随時少量のより高い官能性のアルコール、及び、脂肪族二官能性酸、及び／又は随時芳香族二官能性酸、及び追加的に随時少量のより高い官能性の酸、又は

G) 酸及びアルコール官能基を有する構築ブロック又はその誘導体、又はFとGの混合物及び／又はコポリマー、

但し芳香族酸はすべての酸を基準として50重量%以下の含有率を構成する、及び

H) 芳香族二官能性フェノール及びカーボネート供与体から製造されるカーボネート分、又は、脂肪族炭酸エステル又はその誘導体及びカーボネート供与体から製造されるカーボネート分、

但しエステル含有率F) 及び/又はG) はF)、G) 及びH) の和を基準として少なくとも70重量%である、

からの脂肪族又は脂肪族-芳香族ポリエステル-カーボネート；

I) 脂肪族二官能性アルコール及び/又は随時環状脂肪族二官能性アルコール、及び/又はジオールの一部又はすべての代わりに、エチレングリコール、プロピレングリコール、又はテトラヒドロフランをベースとするモノマー又はオリゴマーポリオール又は10000までの分子量を有するそれらのコポリマー、及び/又は随時少量の分岐状二官能性アルコール、及び追加的に随時少量のより高い官能性のアルコール、及び、脂肪族二官能性酸、及び/又は随時芳香族二官能性酸、及び追加的に随時少量のより高い官能性の酸、又は

K) 酸及びアルコール官能基を有する構築ブロック、又はそれらの誘導体、

又はI) とK) の混合物及び/又はコポリマー、但し芳香族酸はすべての酸を基準として50重量%以下の含有率を構成する、及び

L) 脂肪族及び/又は環状脂肪族二官能性アミン及び/又は随時少量の分岐状二官能性アミン、及び追加的に随時少量のより高い官能性のアミン、及び線状及び/又は環状脂肪族二官能性酸、及び/又は随時少量の分岐状二官能性酸及び/又は随時芳香族二官能性酸、及び追加的に随時少量のより高い官能性の酸からのアミド分、又は

M) 酸及びアミン官能性基を有する構築ブロックのアミド分、又はアミド分としてL) 及びM) の混合物、但しエステル含有率I) 及び/又はK) はI)、K)、L) 及びM) の和を基準として少なくとも30重量%である、

からの脂肪族又は部分的芳香族ポリエステル-アミド又はポリエーテル-エステル-アミド；

から成る群のポリマーから選ばれる、請求項1又は2の成形組成物。



## 【請求項4】 下記のモノマー：

100～10000の分子量（重量平均）を有する、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、エチレンオキシド又はプロピレンオキシドの混合物からランダムに又はブロック形態で構成されたポリグリコール、又はポリテトラヒドロフランを含有して成るオリゴマーポリオール、及び

モノマージオール、並びに、

特定のエステル形態にあることもあるC<sub>2</sub>～C<sub>12</sub>-アルキルジカルボン酸

二官能性酸及び追加的に随時少量のより高い官能性の酸、又は環状脂肪族鎖中に4～20個の炭素原子を有する、酸及びアミド官能基を有する構築ブロックのアミド分、

又はアミド分としてのL)とM)の混合物、但しエステル含有率I)及び／又はK)はI)、K)、L)及びM)の和を基準として少なくとも30重量%である、

から成る群から選ばれた少なくとも1種のモノマー、

から構成されたポリエーテル-エステル-アミドを含有して成る請求項3の成形組成物。

## 【請求項5】 ポリエステル-アミドが、

I) 脂肪族二官能性アルコール及び／又は随時環状脂肪族二官能性アルコール、及び／又はジオールの一部又はすべての代わりに、エチレングリコール、プロピレングリコール、又はテトラヒドロフランをベースとするモノマー又はオリゴマーポリオール又は10000までの分子量を有するそれらのコポリマー、及び／又は随時少量の分岐状二官能性アルコール、及び追加的に随時少量のより高い官能性のアルコール、及び脂肪族二官能性酸、及び／又は随時芳香族二官能性酸、及び追加的に随時少量のより高い官能性の酸、又は

K) 酸及びアルコール官能基を有する構築ブロック、又はそれらの誘導体、又はI)とK)の混合物及び／又はコポリマー、但し芳香族酸はすべての酸を基準として50重量%以下の含有率を構成する、及び

L) 脂肪族及び／又は環状脂肪族二官能性アミン及び／又は随時少量の分岐状

二官能性アミン、及び追加的に随時少量のより高い官能性のアミン、及び線状及び／又は環状脂肪族二官能性酸、及び／又は随時少量の分岐状二官能性酸及び／又は随時芳香族二官能性酸、及び追加的に随時少量のより高い官能性の酸からのアミド分、又は

M) 酸及びアミン官能基を有する構築ブロックのアミド分、

又はアミド分としてL) 及びM) の混合物、但しエステル含有率I) 及び／又はK) はI) 、K) 、L) 及びM) の和を基準として少なくとも30重量%である、

から構成される請求項1～3のいずれかに記載の成形組成物。

【請求項6】 全混合物を基準として0.001～30重量%のA1) に従う安定剤を含有して成る前記請求項の1つに記載の成形組成物。

【請求項7】 A1) 0.005～5重量%を含有して成る前記請求項の1つに記載の成形組成物。

【請求項8】 A2) 0.001～30重量%を含有して成る前記請求項の1つに記載の成形組成物。

【請求項9】 A2) 0.01～5重量%を含有して成る前記請求項の1つに記載の成形組成物。

【請求項10】 成分A1) が、モノマー、オリゴマー又はポリマーカルボジイミド類、多官能性オキサゾリン類、多官能性エポキシド類及び多官能性イソシアネート類から成る群より選ばれる1種以上の安定剤から選ばれる前記請求項の1つに記載の成形組成物。

【請求項11】 カルボジイミド類が、ウレタン化されたカルボジイミド類、N, N' -ジシクロヘキシルカルボジイミド、N-グリシジルフタルイミド、末端イソシアネート、尿素-及び／又はウレタン基を有する1, 3-ビス(1-メチル-1-イソシアナト-エチル) ベンゼン、ビス(トリメチルシリル) カルボジイミド、芳香族又は脂肪族イソシアネート類の二酸化炭素の分解分離を伴って行われる重合から得られ得るポリマー及び／又はポリマー結合したカルボジイミドから選ばれる請求項10の成形組成物。

【請求項12】 イソシアネートが、2, 6-ジイソプロピルフェニルイソ

シアネート、1, 3, 5-トリイソプロピル-2, 4-ジイソシアナトベンゼン、ナフタレン1, 5-ジイソシアネート、2, 4-ジイソシアナト-3, 5-ジエチルトルエン、4, 4'-メチレン-ビス(2, 6-ジエチルフェニルイソシアネート)、4, 4'-メチレン-ビス(2-エチル-6-メチルフェニルイソシアネート)、4, 4'-メチレン-ビス(2-イソプロピル-6-メチルフェニルイソシアネート)、4, 4'-メチレン-ビス(2, 6-ジイソプロピルフェニルイソシアネート)及び4, 4'-メチレン-ビス(2-エチル-6-メチルシクロヘキシルイソシアネート)から成る群より選ばれる請求項11の成形組成物。

【請求項13】 チウラム類、チオフタルイミド類、スルファミド類、尿素誘導体、トリアゾール誘導体、トリアゾリン誘導体、ベンズイミダゾール誘導体、ベンズイミダゾリルカルバミン酸誘導体、アリールスルホン類、スルフェニルスルファミド類、フェノール類及びフェノレート類、チオベンゾチアゾール誘導体、アミノアルコール類、イソチアゾリノン類、ベンゾチアゾール類及びピレスロイド類の構造的種類から成る群より選ばれる抗微生物剤の1種又は混合物を含有して成る前記請求項の1つに記載の成形組成物。

【請求項14】 成分B)が天然に存在する鉱物、合成無機又は天然に存在する有機及び金属充填剤及び強化物質又はそれらの混合物から成る群より選ばれる前記請求項の1つに記載の成形組成物。

【請求項15】 変性剤、加工助剤、可塑剤、離型剤、難燃剤、衝撃改良剤、安定剤及び着色剤から成る群の中の少なくとも1種から選ばれた添加剤を含有して成る前記請求項の1つに記載の成形組成物。

【請求項16】 個々の成分及び随時更なる添加剤を混合し、そして高められた温度で混合物を溶融配合及び溶融押出に付す請求項1～15のいずれかに記載の成形組成物の製造方法。

【請求項17】 生物分解性ポリマーを、生物分解性ポリマー及び少なくとも1種の安定剤A1)又はA2)及び随時成分B)及び添加剤の濃厚物と混合し、そして混合物を高められた温度で溶融配合及び溶融押出に付す、請求項1～15のいずれかに記載の成形組成物の製造方法。

【請求項18】 半仕上げ製品、フィルム、屋根下層ウェブ及び布の構成体としてのフィルム、射出成形品、マルチフィラメント、モノフィラメント、繊維、織布及び自動車内装ライニングの製造のための請求項1～15のいずれかに記載の成形組成物の使用。

【請求項19】 請求項1～15のいずれかに記載の成形組成物から得られる半仕上げ製品、フィルム、屋根下層ウェブ及び布の構成体としてのフィルム、射出成形品、マルチフィラメント、モノフィラメント、繊維、織布及び自動車内装ライニング。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

本発明は、生物分解性 (biologically degradable) ポリマーの加水分解による分解及び微生物分解 (microbial degradation) に対して安定化された熱可塑性成形組成物、熱可塑性生物分解性ポリマーをベースとする濃厚物の製造方法、加水分解に対して安定化されておりそして抗微生物作用 (antimicrobial action) 又は静菌作用 (microbistatic action) を有する熱可塑性生物分解性成形組成物の製造方法及び、半仕上げ製品 (semi-finished products)、フィルム、射出成形品、モノフィラメント及びマルチフィラメント、繊維、不織布及び織布の製造のための生物分解性材料として本発明に従って安定化された成形組成物の使用及びそれから製造された成形物品又は半仕上げ製品、フィルム、射出成形品、モノフィラメント及びマルチフィラメント、繊維、不織布及び織布それ自体に関する。

## 【0002】

生物分解性プラスチックは知られている (ヨーロッパ特許出願公開第561224号 (EP-A-561224)、第641817号 (EP-A-641817))。加水分解安定剤及び殺微生物剤 (microbicides) 及び静菌活性化合物は同様に知られている (例えば、9th corrected and improved edition of Roempp Chemie Lexicon on CD-ROM, version 1.0, Thieme Verlag, key words "Stabilisatoren", "Mikrobizid", "Preventol", "Carbodiimid" 参照)。

## 【0003】

多くの生物分解性材料は一般に、土壌、水及びコンポスト (compost) 中に生存する微生物の存在下でのみならず既にグラニュール (granules) の貯蔵中及びそれから製造された製品の使用中水分の存在下でも遅い速度乃至普通の (moderate) 速度で進行する加水分解による分解機構を受け入れ

易い。

【0004】

本発明の目的は、使用後の仕上げられた部品 (finished components) の所望の生物分解を認められる程度に損なうことなく、この速すぎる分解及び材料の性質の損失を制御すること、特に遅くすることである。

【0005】

更に、1つの目的は、特に本発明に従う成形組成物から製造された半仕上げ製品及び仕上げられた部品の湿気のある気候条件下に貯蔵安定性を増加させそして寿命を長くすることである。生物分解性ポリマーへの添加剤及び安定剤の添加により、生物分解及び加水分解による分解の開始は、例えば、ビルディング地区 (building sector) 又は造園 (landscaping) において長期の使用がこれらの材料で可能であるように遅くされる。

【0006】

本発明は、生物分解性ポリマーと、

群A1) 及びA2)、

A1) 全混合物を基準として、例えば脂肪族又は芳香族モノマー、オリゴマー又はポリマーカルボジイミド類、例えば、ウレタン化されたカルボジイミド類、N, N'-ジシクロヘキシルカルボジイミド、N-グリシジルフタルイミド、末端イソシアナト-、尿素-又はウレタン基を有する1, 3-ビス (1-メチル-1-イソシアナト-エチル) ベンゼン、ビス (トリメチルシリル) -カルボジイミド、多官能性オキゾリン類、多官能性エポキシド類及び多官能性イソシアネート類の如き加水分解安定剤から成る群の少なくとも1つから選ばれた安定剤、好ましくは、例えば、2, 6-ジイソプロピルフェニルイソシアネート、1, 3, 5-トリイソプロピル-2, 4-ジイソシアナトベンゼン、ナフタレン1, 5-ジイソシアネート、2, 4-ジイソシアナト-3, 5-ジエチルトルエン、4, 4'-メチレン-ビス (2, 6-ジエチルフェニルイソシアネート)、4, 4'-メチレン-ビス (2-エチル-6-メチルフェニルイソシアネート)、4, 4'-メチレン-ビス (2-イソプロピル-6-メチルフェニルイソシアネート)、4, 4'-メチレン-ビス (2, 6-ジイソプロピルフェニルイソシアネート)

）及び4，4'-メチレンビス（2-エチル-6-メチルシクロヘキシルイソシアネート）の如き芳香族又は脂肪族イソシアネート類の、例えば二酸化炭素の分解分離（splitting off）を伴う慣用の触媒により行われる重合から得られるポリマー又はポリマー結合したカルボジイミド類から成る群より選ばれた安定剤、0～50重量%、好ましくは0.001～30重量%、特に好ましくは0.05～5重量%、及び

A2) 全混合物を基準として、抗微生物剤、例えば、チウラム類、チオフタルイミド類、スルファミド類、尿素誘導体、トリアゾール誘導体、トリアゾリン誘導体、ベンズイミダゾール誘導体、ベンズイミダゾリルカルバミン酸誘導体、アリールスルホン類、スルフェニルスルファミド類、フェノール類及びフェノレート類、チオベンゾチアゾール誘導体、アミノアルコール類、イソチアゾリノン類、ベンゾチアゾール類及びピレスロイド類から成る群の中の少なくとも1種より選ばれた安定剤0～50重量%、好ましくは0.001～30重量%、特に好ましくは0.01～5重量%、から選ばれた少なくとも1種の安定剤、及び

B) 全混合物を基準として、充填剤及び強化物質、好ましくは天然に存在する鉱物、再生可能な原料をベースとする合成無機物質又は天然に存在する有機物質、又は合成有機物質及び金属物質又はこれらの構成成分のいくつかの混合物を含有して成る熱可塑性生物分解性成形組成物を提供する。

#### 【0007】

食品又はその混合物との接触を認可されているカルボジイミド類は特に好ましい。

#### 【0008】

本発明は、生物分解性ポリマー自体をベースとする添加剤濃厚物（concentrates）も提供する。例えば、ポリエチレン又はポリエステルをベースとするこれまでの濃厚物は完全な生物分解の要求を満足させない。更に、例えば、芳香族ポリエステルをベースとする慣用の濃厚物の融点範囲と生物分解性の通常脂肪族又は部分的芳香族プラスチックの融点範囲は広範に異なり、その結果慣用の既知の濃厚物の生物分解性ポリマーへの均一な配合が困難であった。生物分

解性プラスチックをベースとする濃厚物は材料の良好な相容性 (compatibility) 及び特定のマトリックス中の添加剤の関連した均一な分布という利点を有する。濃厚物は一般に全混合物を基準として40重量%まで、好ましくは1~30重量%、特に5~20重量%の安定剤を含有して成る。

#### 【0009】

適当な生物分解性ポリマーは、例えば、脂肪族ポリエステル又はコポリエステル、芳香族ポリエステル又はコポリエステル、芳香族-脂肪族コポリエステル、ポリカーボネート、ポリエステル-カーボネート、脂肪族又は部分的芳香族ポリエステル-ウレタン、ポリエステル-アミド、ポリエーテル-アミド、ポリエーテル-エステル-アミド、セルロースエーテル、セルロースエーテル-エステル、熱可塑性デンプン、デンプン誘導体又はコポリマー又はこれらの成分の混合物である。

#### 【0010】

下記のポリマーが好ましくは適当である。

#### 【0011】

A) 脂肪族二官能性アルコール、好ましくは線状 $C_2-C_{10}$ -ジアルコール、例えば、エタンジオール、ブタンジオール又はヘキサンジオール、特に好ましくはブタンジオール、及び/又は随時環状脂肪族二官能性アルコール、好ましくは環状脂肪族環に5個又は6個の炭素原子を有するもの、例えば、シクロヘキサンジメタノール、及び/又はジオールの一部又はすべての代わりに、エチレングリコール、プロピレングリコール、又はテトラヒドロフランをベースとするモノマー又はオリゴマーポリオール又は8000まで、好ましくは4000までの分子量を有するそれらのコポリマー、及び/又は随時少量の分岐状二官能性アルコール、好ましくは $C_3-C_{12}$ -アルキルジオール、例えば、ネオペンチルグリコール、及び追加的に随時少量のより高い官能性のアルコール、例えば、1, 2, 3-プロパントリオール、又はトリメチロールプロパン、及び、脂肪族二官能性酸、好ましくは $C_2-C_{12}$ -アルキルジカルボン酸、例えば且つ好ましくは、コハク酸又はアジピン酸、及び/又は随時芳香族二官能性酸、例えば、テレフタル酸、イソフタル酸又はナフタレンジカルボン酸及び追加的に随時少量のより高い



官能性の酸、例えばトリメリト酸、又は

B) 酸及びアルコール官能基を有し、好ましくはアルキル鎖中に2～12個の炭素原子を有する構築ブロック、例えば、ヒドロキシ酪酸、ヒドロキシ吉草酸又は乳酸又はそれらの誘導体、例えば、 $\epsilon$ -カプロラクトン又はジラクチド又はAとBの混合物及び／又はコポリマー、但し芳香族酸はすべての酸を基準として50重量%以下の含有率を構成する、

からの脂肪族又は部分的芳香族ポリエステル；

C) 脂肪族二官能性アルコール、好ましくは線状 $C_2-C_{10}$ -ジオール、例えば、エタンジオール、ブタンジオール又はヘキサンジオール、特に好ましくはブタンジオール、及び／又は随時環状脂肪族二官能性アルコール、好ましくは $C_3$ -又は $C_6$ -環状脂肪族環を有するもの、例えば、シクロヘキサンジメタノール、及び／又はジオールの一部又はすべての代わりに、エチレングリコール、プロピレングリコール、又はテトラヒドロフランをベースとするモノマー又はオリゴマーポリオール又は4000まで、好ましくは1000までの分子量を有するそれらのコポリマー、及び／又は随時少量の分岐状二官能性アルコール、好ましくは $C_3-C_{12}$ -アルキルジオール、例えば、ネオペンチルグリコール、及び追加的に随時少量のより高い官能性のアルコール、例えば $C_3-C_{12}$ -アルキルポリオール、例えば、1, 2, 3-プロパントリオール、又はトリメチロールプロパン、及び、脂肪族二官能性酸、好ましくは $C_2-C_{12}$ -アルキルジカルボン酸、例えば且つ好ましくは、コハク酸又はアジピン酸、及び／又は随時芳香族二官能性酸、例えば、テレフタル酸、イソフタル酸又はナフタレンジカルボン酸、及び追加的に随時少量のより高い官能性の酸、例えばトリメリト酸、又は、

D) 酸及びアルコール官能基を有し、好ましくは2～12個の炭素原子を有する構築ブロック、例えば、ヒドロキシ酪酸、ヒドロキシ吉草酸又は乳酸又はそれらの誘導体、例えば、 $\epsilon$ -カプロラクトン又はジラクチド、又はCとDの混合物及び／又はコポリマー、

但し芳香族酸はすべての酸を基準として50重量%以下の含有率を構成する、

E) C及び／又はDと、脂肪族及び／又は環状脂肪族二官能性イソシアネート及び追加的に随時より高い官能性の、好ましくは1～12個の炭素原子又は環状

脂肪族イソシアネートの場合には5～8個の炭素原子を有するイソシアネート、例えば、テトラメチレンジイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネート又はイソホロンジイソシアネート、随時追加的に線状及び／又は分岐状及び／又は環状脂肪族二官能性アルコール及び／又はより高い官能性のアルコール、好ましくは $C_3-C_{12}$ -アルキルジオール又はポリオール、又は環状脂肪族アルコールの場合には5～8個の炭素原子を有するもの、例えば、エタンジオール、ヘキサンジオール、ブタンジオール又はシクロヘキサンジメタノール、及び／又は随時追加的に線状及び／又は分岐状及び／又は環状脂肪族二官能性アミン及び／又はアミノアルコール及び／又はより高い官能性の、好ましくはアルキル鎖中に1～12個の炭素原子を有するアミン及び／又はアミノアルコール、例えばエチレンジアミン又はアミノエタノール、及び／又は随時更に変性されたアミン又はアルコール、例えば遊離酸又は塩としてのエチレンジアミノエタンスルホン酸、との反応生成物、

但しエステル含有率 (e s t e r c o n t e n t) C) 及び／又はD) は、C)、D) 及びE) の和を基準として少なくとも75重量%である、からの脂肪族又は部分的芳香族ポリエステル-ポリウレタン；

F) 脂肪族二官能性アルコール、好ましくは線状 $C_2-C_{10}$ -ジオール、例えば、エタンジオール、ブタンジオール又はヘキサンジオール、特に好ましくはブタンジオール、及び／又は随時環状脂肪族二官能性アルコール、好ましくは環状脂肪族環において5～8個の炭素原子を有するもの、例えば、シクロヘキサンジメタノール、及び／又はジオールの一部又はすべての代わりに、エチレングリコール、プロピレングリコール、又はテトラヒドロフランをベースとするモノマー又はオリゴマーポリオール又は4000まで、好ましくは1000までの分子量を有するそれらのコポリマー、及び／又は随時少量の分岐状二官能性アルコール、好ましくは $C_2-C_{12}$ -アルキルジカルボン酸、例えば、ネオペンチルグリコール、及び追加的に随時少量のより高い官能性のアルコール、例えば、1, 2, 3-プロパントリオール、又はトリメチロールプロパン、及び、脂肪族二官能性酸、例えば且つ好ましくは、コハク酸又はアジピン酸、及び／又は随時芳香族二官能性酸、例えば、テレフタル酸、イソフタル酸又はナフタレンジカルボ

ン酸、及び追加的に随時少量のより高い官能性の酸、例えばトリメリト酸、又は

G) 酸及びアルコール官能基を有し、アルキル鎖中に好ましくは2～12個の炭素原子を有する構築ブロック、例えば、ヒドロキシ酪酸、ヒドロキシ吉草酸又は乳酸又はそれらの誘導体、例えば、 $\epsilon$ -カプロラクトン又はジラクチド、又はFとGの混合物及び／又はコポリマー、

但し芳香族酸はすべての酸を基準として50重量%以下の含有率を構成する、

H) 芳香族二官能性フェノール、好ましくはビスフェノールA及びカーボネート供与体、例えばホスゲンから製造されるカーボネート分 (carbonate content)、又は、脂肪族炭酸エステル又はその誘導体、例えばクロロ炭酸エステル又は脂肪族カルボン酸又はその誘導体、例えば塩及びカーボネート供与体、例えばホスゲンから製造されるカーボネート分、

但しエステル含有率F) 及び／又はG) はF)、G) 及びH) の和を基準として少なくとも70重量%である、

からの脂肪族又は脂肪族-芳香族ポリエステル-カーボネート；

I) 脂肪族二官能性アルコール、好ましくは線状 $C_2-C_{10}$ -ジアルコール、例えば、エタンジオール、ブタンジオール又はヘキサンジオール、特に好ましくはブタンジオール、及び／又は随時環状脂肪族二官能性アルコール、好ましくは5～8個の炭素原子を有するもの、例えば、シクロヘキサンジメタノール、及び／又はジオールの一部又はすべての代わりに、エチレングリコール、プロピレングリコール、又はテトラヒドロフランをベースとするモノマー又はオリゴマーポリオール又は10000まで、好ましくは8000まで、特に好ましくは5000までの分子量を有するそれらのコポリマー、及び／又は随時少量の分岐状二官能性アルコール、好ましくは $C_3-C_{12}$ -アルキルジオール、例えば、ネオペンチルグリコール、及び追加的に随時少量のより高い官能性のアルコール、好ましくは $C_3-C_{12}$ -アルキルポリオール、例えば、1, 2, 3-プロパントリオール、又はトリメチロールプロパン、及び、脂肪族二官能性酸、好ましくはアルキル鎖中に2～12個の炭素原子を有するもの、例えば且つ好ましくは、コハク酸又はアジピン酸、及び／又は随時芳香族二官能性酸、例えば、テレフタル酸、イソフタル酸又はナフタレンジカルボン酸、及び追加的に随時少量のより高い官

能性の酸、例えばトリメリト酸、又は

K) 酸及びアルコール官能基を有し、炭素鎖中に好ましくは2～12個の炭素原子を有する構築ブロック、例えば、ヒドロキシ酪酸、ヒドロキシ吉草酸又は乳酸又はそれらの誘導体、例えば、 $\epsilon$ -カプロラクトン又はジラクチド、

又はIとKの混合物及び／又はコポリマー、但し芳香族酸はすべての酸を基準として50重量%以下の含有率を構成する、

L) 脂肪族及び／又は環状脂肪族二官能性アミン及び／又は随時少量の分岐状二官能性アミン、好ましくは線状脂肪族 $C_2-C_{10}$ -ジアミン、及び追加的に随時少量のより高い官能性のアミン、該アミンノ中でも好ましくはヘキサメチレンジアミン又はイソホロンジアミン、特に好ましくはヘキサメチレンジアミン、及び線状及び／又は環状脂肪族二官能性酸、好ましくはアルキル鎖中に2～12個の炭素原子を有するもの、又は環状脂肪族酸の場合には $C_5$ -又は $C_6$ -環、好ましくはアジピン酸、及び／又は随時少量の分岐状二官能性酸及び／又は随時芳香族二官能性酸、例えばテレフタル酸、イソフタル酸又はナフタレンジカルボン酸及び追加的に随時少量のより高い官能性の、好ましくは2～10個の炭素原子を有する酸からのアミド分、又は

M) 酸及びアミン官能性基を有し、好ましくは環状脂肪族鎖中に4～20個の炭素原子を有する構築ブロックのアミド分、

又はアミド分としてL) 及びM) の混合物、但しエステル含有率I) 及び／又はK) はI) 、K) 、L) 及びM) の和を基準として少なくとも30重量%であり、そして好ましくはエステル構造の重量含有率は30～70重量%でありそしてアミド構造の含有率は70～30重量%である、

からの脂肪族又は部分的芳香族ポリエステル-アミド又はポリエーテルエステル-アミドである。

#### 【0012】

ポリエーテル-エステル-アミドは特に下記のモノマーから構成される。

#### 【0013】

100～10000の分子量(重量平均)を有する、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、エチレンオキシド又はプロピレンオキシドの混合

物からランダムに又はブロック形態で構成されたポリグリコール又はポリテトラヒドロフランを含有して成るオリゴマーポリオール、及び

モノマージオール、好ましくは $C_2-C_{12}$ -アルキルジオール、特に $C_2-C_6$ -アルキルジオール、例えば、エチレングリコール、1,4-ブタンジオール、1,3-プロパンジオール、又は1,6-ヘキサジオール、並びに

ジカルボン酸、好ましくは $C_2-C_{12}$ -、特に好ましくは $C_2-C_6$ -アルキルジカルボン酸、例えば、シュウ酸、コハク酸又はアジピン酸、これらは特定のエーテル（メチル、エチル等）の形態にあることもある、

$C_2-C_{12}$ -アルキルヒドロキシカルボン酸及びラクトン、例えば、中でもカプロラクトン、

アルキル鎖中に2～12個の炭素原子を有するアミノアルコール、例えば、エタノールアミン又はプロパノールアミン、

5～12個、好ましくは6～11個の炭素原子を有する環状ラクタム、例えば $\epsilon$ -カプロラクタム又はラウリルラクタム等、

アルキル鎖中に6～12個の炭素原子を有する $\omega$ -アミノカルボン酸、例えばアミノカブロン酸等、

$C_2-C_{12}$ -アルキルジカルボン酸、例えばアジピン酸又はコハク酸及び $C_2-C_{12}$ -アルキルジアミン、例えばヘキサメチレンジアミン又はジアミノブタンの混合物（1：1塩）、

から成る群より選ばれる少なくとも1種のモノマー。

#### 【0014】

ヒドロキシル末端基又は酸末端基及び300～10000の分子量を有するポリエステルをエステル形成性成分として使用することもできる。

#### 【0015】

ポリマー中のエーテル含有率及びエステル含有率の割合は一般に全ポリマーを基準として5～85重量%である。

#### 【0016】

本発明に従うポリエーテルエステルアミドは一般に10000～300000、好ましくは15000～150000、特に15000～100000の平

均分子量（ポリスチレン標準に対してクレゾール中のゲルクロマトグラフィーにより決定されたMw）を有する。

【0017】

すべての酸は、誘導体、例えば酸塩化物又は、モノマーエステル及びオリゴマーエステルとしてのエステルの形態で使用することもできる。

【0018】

本発明に従う生物分解性ポリエステルアミドの合成は、場合により水の添加及び反応混合物からのその後の水の除去を伴う出発成分の化学量論的混合による「ポリアミド法」及び酸基のエステル化及びこれらのエステルのその後のエステル交換（*transesterification*）又はアミド転移（*transamidation*）を伴う出発成分の化学量論的混合及び過剰のジオールの添加による「ポリエステル法」により行うことができる。この第2の場合には、水の他に、過剰のジオールもやはり除去される。説明した「ポリエステル法」による合成は好ましい。

【0019】

重縮合は更に既知の触媒により促進させることができる。ポリアミド合成を促進する既知のリン化合物及びエステル化のための酸又は有機金属触媒及びこの2つの組み合わせも重縮合の促進のために可能である。

【0020】

触媒は生物分解性又はコンポスタビリティにも得られるコンポストの品質にも不利な影響を与えないことが保証されるべきである。ポリエステルアミドを与えるための重縮合は、縮合を促進しそして分岐した生成物をもたらす（例えば、ドイツ特許公開公報第3831709号（DE-A-3831709）参照）例えばアミノエチルアミノエタノールのようなアミド形成により分岐するリシン、リシン誘導体又は他の製品を使用することにより更に影響されうる。

【0021】

ポリエステル、ポリエステルカーボネート及びポリエステルウレタンの製造は一般に知られているか又は既知の方法と同様に行われる。（ヨーロッパ特許公開公報第304787号（例えば、EP-A-304787）、WO95/1

2629、WO93/13154、ヨーロッパ特許公開公報第682054号（EP-A-682054）及びヨーロッパ特許公開公報第593975号（EP-A-593975）参照）。

#### 【0022】

本発明に従うポリエステル、ポリエステルーウレタン、ポリエステルーカーボネート又はポリエステルーアミドは更に分岐剤0.1～5重量%、好ましくは0.1～1重量%を含有して成ることができる（ポリマーの説明も参照）。これらの分岐剤は、例えば三官能性アルコール、例えばトリメチロールプロパン又はグリセロール、四官能性アルコール、例えば、ペンタエリトリール又は三官能性カルボン酸、例えばクエン酸であることができる。分岐剤は本発明に従うポリエステルーアミドの熔融粘度を、これらのポリマーによる押出ブロー成形が可能となる程度に増加させる。これらの材料の生物分解は結果として妨害されない。

#### 【0023】

生物分解性／コンポスタブルポリエステルーウレタン、ポリエステル、ポリエステルーカーボネート及びポリエステルーアミドは、一般に少なくとも10000g／モルの分子量を有しそして一般にポリマー中の出発物質のランダムな分布を有する。随時C）及びD）及びE）から構成されたポリウレタンの典型的なポリマーにおいては、モノマー構築ブロックの完全にランダムな分布は必ずしも期待されるべきではない。

#### 【0024】

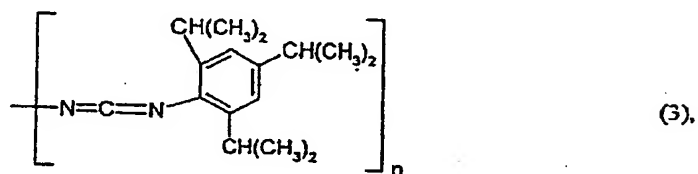
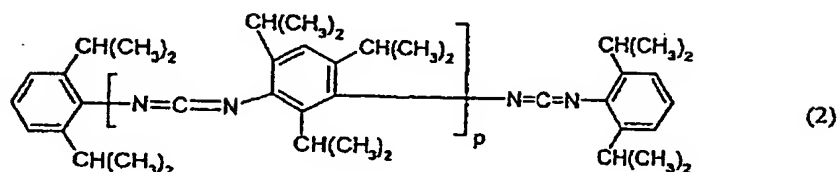
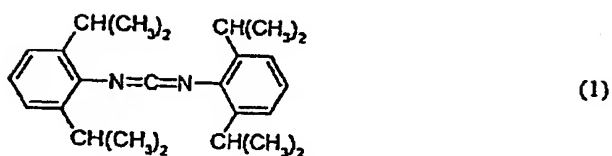
特に好ましいポリカルボジイミドは、カルボジイミド基に対してo-位置、即ち、ベンゼン核の2，6-又は2，4，6-位置においてイソプロピル基で置換されている芳香族ポリカルボジイミドである。存在するポリカルボジイミドは好ましくは1500～15000、特に9000～12000の平均分子量を有する。特に、少量の芳香族及び／又は脂肪族（ポリ）カルボジイミドの添加により、生物分解性プラスチックの末端基含有率が減少しそして生物分解性プラスチックの加水分解安定性が達成されるように熱酸化性安定性を増加させることが可能である。

#### 【0025】

下記のカルボジイミドを例として挙げることができる。

【0026】

【化1】



【0027】

式中、

p は分子量により決定される。

【0028】

カルボジイミドはそれ自体既知の方法により製造することができる（例えばドイツ特許公告公報第2537685号（DE-AS2537685）、ドイツ特許公告公報第1156401号（DE-AS1156401）、ドイツ特許公告公報第2419968号（DE-AS2419968）及びフランス特許第1180307号（FR1180307））。

【0029】

本発明に従う適当な充填剤及び強化物質は、鉱物、例えば、カオリン、チョーク、石膏、雲母、石灰又はタルク又は天然に存在する物質、例えば、デンプン又は変性デンプン、セルロース又はセルロース誘導体又はセルロース製品、木粉又



は天然繊維、例えば大麻、亜麻、サイザル麻、セイヨウアブラナ (rape) 又はラミー (ramie) であることができる。さらに使用できる金属充填剤は鉄粉、酸化鉄、鉄合金 (例えばフェロチタン、フェロモリブデン、フェロマンガング)、タングステン、炭化タングステン、フェロタングステン、モリブデン、マンガング、コバルト、銅、亜鉛、錫又はビスマス又はそれらの組み合わせである。

#### 【0030】

本発明に従う生物分解性／完全にコンポストابلなポリエステルーウレタン、ポリエステル、ポリエステルーカーボネート及びポリエステルーアミドは慣用の添加剤を含有することができる。かくして、変性剤 (modifying agents) 及び／又は加工助剤、例えば核剤、可塑剤、離型剤、難燃剤、衝撃改良剤、例えば熱に対する安定性、酸化に対する安定性及び紫外線及び光に対する安定性のための安定剤、着色剤 (例えば顔料) 又は熱可塑性プラスチックの分野で普通の他の添加剤を使用することが可能であるが、完全なコンポストビリティが損なわれないこと又は残存する物質、例えば餛物助剤がコンポスト中で無害であることが保証されるべきである。添加剤は一般に全混合物を基準として15重量%までの量で加えられる。

#### 【0031】

本発明に従う成形組成物は生物分解性であり、好ましくは完全に分解性である。DIN 54900に従って完全に分解性であるとして分類することができるこれらの成形組成物は特に好ましい。

#### 【0032】

本発明に従う生物分解性／完全にコンポストابلなポリエステルーウレタン、ポリエステル、ポリエステルーカーボネート、及びポリエステルーアミドは更なるブレンド相手、例えば熱可塑性デンプンと混合することもできるが、完全なコンポストビリティが損なわれないこと又は残存する物質、例えば餛物助剤がコンポスト中で無害であることが保証されるべきである。

#### 【0033】

生物分解性が必要とされない更なる使用分野に使用することができる更なるブレンド相手は、

ポリエチレン、変性されたポリエチレン、例えば、無水マレイン酸で変性されたLDPE、フッ素熱可塑性プラスチック、例えばポリテトラフルオロエチレン、テトラフルオロエチレン／ヘキサフルオロプロピレンコポリマー、テトラフルオロエチレン／パーフルオロアルコキシビニルエーテルコポリマー、エチレン／テトラフルオロエチレンコポリマー、ポリクロロトリフルオロエチレン、エチレン／クロロトリフルオロエチレンコポリマー、ポリフッ化ビニリデン、ポリフッ化ビニル、ポリフルオロアルコキシアルカン、テトラフルオロエチレン／ヘキサフルオロプロピレン／フッ化ビニリデンコポリマー、無定形パーフッ素化ポリマー、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、ポリプロピレン、ポリビニルアルコール、ポリ酢酸ビニル、部分的に加水分解されたポリ酢酸ビニル、ポリビニルエーテル、ポリエーテル、ポリアクリレート、脂肪族ポリエステル又はコポリエステル、芳香族ポリエステル又はコポリエステル、芳香族－脂肪族コポリエステル、ポリカーボネート、ポリエステル－カーボネート、部分的芳香族ポリウレタン、脂肪族ポリウレタン、ポリエステル－ウレタン、ポリアミド、ポリエステル－アミド、ポリエーテル－アミド、ポリエーテル－エステル－アミド、セルロースエーテル、セルロースエーテル－エステル、デンプン誘導体又はコポリマー又は挙げられたこれらのいくつかの混合物である。

#### 【0034】

ブレンド相手は、成形組成物の全量を基準として99重量%の含有率まで、好ましくは70重量%まで使用することができる。

#### 【0035】

本発明は、個々の成分及び随時更なる添加剤（慣用の添加剤）を既知の方法で混合しそして混合物を慣用の装置、例えばインターナルニーダ（internal kneaders）、押出機及び二軸スクリュウ押出機において好ましくは150～300℃の高められた温度で溶融配合（melt compounding）及び溶融押出に付すことを特徴とする、本発明に従う成形組成物の製造方法も提供する。

#### 【0036】

本発明は、生物分解性ポリマーを生物分解性ポリマーと少なくとも1種の安定

剤A1)又はA2)及び随時成分B)及び添加剤の濃厚物と混合しそして混合物を高められた温度で溶融配合及び溶融押出に付す、請求項1～15の成形組成物の製造方法も提供する。

#### 【0037】

使用することができる押出機は、例えば、

完全にインターロックするスクリューを有する密に組合わさっている (densely combining) 二軸スクリュー押出機、ステーターローター原理により作動する高性能押出用単軸スクリュー押出機 [例えばライフエンホイザー社からのスタロミックス (Staromix (商標))]、三軸スクリュー押出機、連続/不連続操作式コニーダ (CO kneader) 及びゆっくりと動くローターステーター (slow-running rotor-stator) 組み合わせを有する連続分散ニーダー (例えばマンハイム、ドライス社のKEX) である。

#### 【0038】

本発明は、半仕上げ製品、フィルム、特に衛生用フィルム、ごみ袋、屋根裏地ウェブ (roof underlining webs) 及び布の構成体としてのフィルム、射出成形品、特に植物植木鉢 (plant pot)、植物クランプ (plant clamp) 及び植物バインダー (plant binders)、マルチフィラメント、モノフィラメント、繊維、特に短繊維 (cut fiber) 及びヒートシール可能な紙をコーティングするための繊維、不織布及び織布、特にジェオテキスタイル (geotextiles)、保護作業布及び自動車内装ライニング及び物品自体である。

#### 【0039】

##### 【実施例】

##### 実施例1

ポリエステルーアミド (例えば、バイエル社からのBAK<sup>®</sup>1095) を、>35のL/D比及び特別の混練要素を有し、少なくとも第1の冷却された取り入れ口ゾーンを有するシュツットガルトのペルナー・ウンツ・プフライデラー社のタイプZSKの二軸スクリュー押出機で170℃～190℃で芳香族ポリカルボ

ジイミド [例えば、ライン・ヘミー・レイノー社のスタバクソール (Stabaxol (商標)) P100] と共に溶解させた。この方法で押し出されたストランドを水浴で冷却し、顆粒化しそして乾燥した。

#### 【0040】

BAK (商標) 1095 は、20℃でメタクレゾール中で1重量%溶液で測定した2.78の相対溶液粘度を有するランダムに共重縮合された70/30のエステル/アミド比を持つ、アジピン酸、ブタンジオール及びカプロラクタムのポリエステル-アミドである。

#### 【0041】

BAK (商標) 2195 は、20℃でメタクレゾール中で1重量%溶液で測定した2.8の相対溶液粘度を有するランダムに共重縮合された、アジピン酸32.3重量%、1,4-ブタンジオール11.7重量%、ジエチレングリコール15.0重量%、AH塩4.1重量%のポリエステル-アミドである。

#### 【0042】

【表1】

表1

加水分解安定剤を有する濃厚物 (組成の数値データは重量%を表す)

濃厚物	A	B	C	D	E
BAK (商標) 1095	90		90		-
BAK (商標) 2195		90		90	90
スタバクソール (Stabaxol (商標)) P	10	10			
スタバクソール (Stabaxol (商標)) P100			10	10	
スタバクソール (Stabaxol (商標)) P200					10
相対溶液粘度	2.78	2.72	3.91	3.27	2.66

#### 【0043】

##### 実施例2

BAK (商標) 2195 を実施例1に従って製造された濃厚物との混合物として射出成形してテストバー (80\*10\*4 mm) とした。バーを水中に60℃で

貯蔵し、それにアジ化ナトリウム0.02重量%を殺生物剤 (biocide) として加えて安定性を維持する。結果を表2に示す。

【0044】

【表2】

表2 60℃における水中での貯蔵の結果

貯蔵時間/ 日	安定化 されていない BAK 2195	BAK 2195 + 10% 実施例1からの 濃厚物B (1%スチブキール Pに相当する)	BAK 2195 + 10% 実施例1からの 濃厚物D (1%スチブキール P100に相当する)	BAK 2195 + 10% 実施例1からの 濃厚物 (1%スチブキール P200に相当する)
0	2.66	2.67	2.75	2.76
24	2.76	2.54	2.66	2.82
48	2.33	2.47	2.49	2.85
70		2.42	2.48	
72				2.71
144	2.15			
168	2.15	2.32	2.40	2.47
336		2.06	2.08	2.13
504	1.71			1.80
648	1.59			
672				1.63
816		1.59	1.61	
840				1.47

## 【国際調査報告】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Int. l. Application No.  
PCT/EP 98/07690

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
IPC 6	C08K5/00	C08K5/29 C08K3/00 C08L77/00 C08L67/00
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)		
IPC 6 C08K		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 0 271 914 A (DOW) 22 June 1988 see page 4, line 44 see page 8, line 9 - line 11; examples	1,3, 10-12
P,X	EP 0 850 985 A (NISSHINBO) 1 July 1998 see claims 1,3,5,6; examples	1-3,6,8, 10,11
E	EP 0 890 604 A (NISSHINBO) 13 January 1999 see claims 1,3; examples 1-3	1,2, 10-12
X	EP 0 527 371 A (BASF) 17 February 1993 see claims 1,7,8; example B	1,3,10, 11
-/-		
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C. <input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (see specification) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "Z" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search		Date of mailing of the international search report
9 April 1999		22/04/1999
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.O. Box 5818 Petersilien 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel: (+31-70) 340-2040, Tx 31 651 apo 19, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer  Engel, S

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1998)

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.  
PCT/EP 98/07690

C. (Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category	Citation of document, with indication where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 0 460 481 A (BAYER) 11 December 1991 see page 3, line 51 - page 4, line 19; claims 1,9	1,10,11
X	DATABASE WPI Section Ch, Week 9521 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class A25, AN 95-159141 XP002031040 & JP 07 082471 A (KURARAY CO LTD) , 28 March 1995 see abstract	1,3,10, 11

Form PCT/ISA210 (continuation of second sheet) (July 1992)

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

Int. Patent Application No.

PCT/EP 98/07690

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 271914 A	22-06-1988	US 4772649 A	20-09-1988
		AU 589820 B	19-10-1989
		AU 8125487 A	23-06-1988
		CA 1270082 A	05-06-1990
		DE 3775909 A	20-02-1992
		JP 63179961 A	23-07-1988
EP 850985 A	01-07-1998	JP 10182990 A	07-07-1998
EP 890604 A	13-01-1999	NONE	
EP 527371 A	17-02-1993	CA 2076244 A	18-02-1994
		DE 4126359 A	11-02-1993
		JP 5194356 A	03-08-1993
		US 5246993 A	21-09-1994
EP 460481 A	11-12-1991	DE 4018184 A	12-12-1991
		CA 2043820 A	08-12-1991
		DE 59108641 D	07-05-1997
		ES 2099104 T	16-05-1997
		JP 5093056 A	16-04-1993
		US 5210170 A	11-05-1993



フロントページの続き

(81)指定国 EP(AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AP(GH, GM, KE, LS, MW, SD, SZ, UG, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZW

(72)発明者 エツカート, アルミン

ドイツ連邦共和国デー68766ホツケンハイム・ハインリヒーフオンークライストーシュトラッセ13

(72)発明者 ミュラー, フォルカー

ドイツ連邦共和国デー76661フライリツプスブルク・シュツツエンベーク7

Fターム(参考) 4J002 AB01Y AB02W AB03W AB04W

AB04Y AH00Y CF03W CF05W

CF06W CF07W CF10W CG00W

CG01W CG04W CH02W CK02W

CL08W CM02X DA078 DA088

DA108 DA118 DB018 DC008

DE118 DJ008 DJ038 DJ048

DJ058 EJ017 EJ077 EL026

EN107 ER006 ET006 ET016

ET017 EU026 EU117 EU167

EU226 EV167 EV237 EV277

EV317 EV327 EV347 EX076

FD01Y FD018 FD029 FD03X

FD036 FD037 FD039 FD099

FD139 FD169 GK00 GL00

GN00

